

501/685
(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2003年7月31日 (31.07.2003)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 03/061396 A1

(51) 国際特許分類: A23D 9/00, A23L 1/30, C11B 5/00, C09K 15/04

(21) 国際出願番号: PCT/JP03/00396

(22) 国際出願日: 2003年1月20日 (20.01.2003)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ: 18.1 July.04
特願2002-9739 2002年1月18日 (18.01.2002) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 鐘淵化
学工業株式会社 (KANEKA CORPORATION) [JP/JP];
〒530-8288 大阪府 大阪市 北区中之島3丁目2番4号
Osaka (JP).

(72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 白石 忠義
(SHIRAIKI,Tadayoshi) [JP/JP]; 〒676-0025 兵庫県
高砂市 西畠3丁目8-14 Hyogo (JP). 阿部 真幸
(ABE,Masayuki) [JP/JP]; 〒676-0801 兵庫県 高砂市
米田町米田新203-17 Hyogo (JP). 河島 武志
(KAWASHIMA,Takeshi) [JP/JP]; 〒675-0022 兵庫県

(81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SI, SK, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
— 國際調査報告書

[続葉有]

(54) Title: UBIQUINONE-ENRICHED FOODS

(54) 発明の名称: ユビキノンを富化した食品

(57) Abstract: It is intended to provide foods for supplying ubiquinone which are prepared by adding a composition containing ubiquinone and a fat; ubiquinone-containing edible fat compositions; a process for producing a food for supplying ubiquinone which comprises dissolving ubiquinone in a fat by heating and adding the thus obtained mixture to a food material; a method of preventing the sedimentation and/or localization of ubiquinone in a food which comprises dissolving ubiquinone in a fat by heating and adding the thus obtained mixture to a food material to thereby produce a food; and a method of supplying ubiquinone by taking the above food.

(57) 要約:

ユビキノン及び油脂を含有する組成物を添加して得られるユビキノン補給用食
品; ユビキノンを含有する食用油脂組成物; ユビキノンを油脂に加熱溶解し、得
られた混合物を食品原料に添加する、ユビキノン補給用食品の製造方法; ユビキ
ノンを油脂に加熱溶解し、得られた混合物を食品原料に添加して食品を製造する、
食品中でのユビキノンの析出及び/又は局在化防止方法; 上記食品を摂取する、
ユビキノンの補給方法を提供する。

WO 03/061396 A1



2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明細書

ユビキノンを富化した食品

技術分野

5 本発明は、日常生活で通常の食品と同様に摂取することにより、生体に必要不可欠で加齢やストレスにより減少し不足しがちなユビキノンを容易に補給することが出来るユビキノンを富化した食品及びその用途、その製造法に関するものである。

10 背景技術

ユビキノンは広く生物界に分布するベンゾキノン誘導体である。ユビキノンは、ミトコンドリア、リソゾーム、ゴルジ体、ミクロソーム、ペルオキシソーム、或いは細胞膜等に局在し、電子伝達系の構成成分としてATP産生賦活、生体内での抗酸化作用、膜安定化に関与している事が知られている生体の機能維持に必要不可欠な物質である。ユビキノンは、食事によって補給される一方、生体内でも生合成されている事より、正常な状態ではユビキノンの必要量は充足されているかに見えるが、これらの生体内での含量は加齢や生体が受ける種々のストレスにより顕著に減少することが知られている。

例えば、ヒト心臓中ユビキノン含量は、19歳～21歳の場合 110.0 μg / g であるのに対し、77歳～81歳では 47.2 μg / g と半減することが報告されている (Kalen. A. et al., Lipids, 24, 579-584 (1989))。また、尿毒症及び慢性の血液透析患者、種々のアレルギー患者の血漿中ユビキノン含量は健常人に比較し減少している (Triolo, L., Nephron, 66153-156 (1994))、(Folkers, K., BioFactors, 1303-306 (1988))。高脂血症患者では、LDLコレステロール画分のユビキノン含量が減少している (Kontush, A., et al., Atherosclerosis, 129119-126 (1997))。更に、昨今高コレステロール血漿治療剤として汎用されているコレステロール合成阻害剤の投与が、ユビキノンの生合成をも阻害し、組

織でのユビキノン濃度の低下をもたらしていることが指摘されている (E. L. Appelkvist et al., Clinical Investigator, 71, S97-S102 (1993))。更に、激しい運動や過労時等、生体内で過酸化物が生成しやすい条件下においても、組織内濃度の減少が推定されている。生体内ユビキノン含量の低下は、その特性上、ATP産生力の減退、心機能の減退、酸化ストレスに対する抵抗性の減退、生体膜の不安定化をもたらし、健康上好ましくない。

不足しているユビキノンを補給することは、ミトコンドリアでのエネルギー産生促進及び生体の抗酸化能を向上し恒常性を維持するために有益である。事実、ユビキノン投与により心機能の亢進が報告されており (Kishi, T. et al., Clin. Investg., 71, S71-S75 (1993))、ユビキノンは鬱血性心不全、狭心症、心筋梗塞等の心疾患の改善効果 (Singh, R. B. et al., Inter. J. Cardiology, 68, 23-29 (1999)、Singh, R. B. et al., Cardiovasc. Ther., 12347-353 (1998))、動脈硬化・高血圧・糖尿病・癌・歯周病・アレルギーの予防・改善効果 (Singh, R. B. et al., Atherosclerosis, 148275-282 (1999)、Digiesi, V. et al., Curr. Therap. Res., 51668-672 (1992)、紀氏建雄ら、口腔衛生学会誌, 43667-672 (1993)、Shimura Y. et al., 臨床と研究, 58, 1349-1352 (1981))、生殖能向上効果、LDLコレステロールの酸化抑制、腎透析患者での透析回数の減少効果、非特異的免疫能の増強効果等が知られている (Stocker, et al., Mol. Med., 18, S85-S103 (1997)、Lippa, S., Mol. Aspects Med., 15, S213-S219 (1994))。また、ユビキノンは既に、鬱血性心不全或いは軽度な心疾患による動悸、息切れ、むくみの治療薬として利用されている。

上記の様に、生体の機能維持に必要不可欠で加齢やストレスにより減少し不足しがちなユビキノンを補給する方法としては、錠剤、カプセル剤の形態で医薬と

して、或いはサプリメントとして補給する方法が既に実施されているが、不足の度合いが軽度で医療の対象とならない健康人、或いは半健康人にとって、錠剤やカプセルとして摂取するよりも、通常の食品と同様に摂取する方が簡便である。また食品の場合、多様な風味や形態の食品を製造する事が出来、継続して利用し
5 ても飽きが来ずメリットが多い。

ユビキノンは、肉類、魚類、穀物、野菜、果物、乳製品、卵等通常の多くの動植物由来食品に広く含有されている事が知られているが、その含量は、牛肉等で
30 $\mu\text{g/g}$ と高い場合を除き一般に低い。例えば、鶏卵で 1.5 $\mu\text{g/g}$ 、小麦粉パンで 1.1 $\mu\text{g/g}$ 、ジャガイモで 0.52 $\mu\text{g/g}$ 程度でしかなく、通常の食事で摂取出来る量は、1日当たり 3~5 mg 程度である。更に、ユビキノンの経口摂取時の吸収率は低く、一般的な食品を通常に摂取していたのでは、種々のストレスにより減少する生体内ユビキノンを十分に補充する事は容易でない。

この様な場合、ユビキノンを富化した食品を利用すれば、食品成分との相互作用により吸収率の改善が期待出来、不足しがちなユビキノンの補給が容易に可能
15 になると考えられるが、昨今まで、ユビキノンが本邦では医薬品として分類され食品としての利用が制限されていた経緯もあり、ユビキノンを添加した食品の例は殆どない。僅かに、特開平 3-167293 号「脂肪又は脂肪含有製品の酸化防止方法」、特開 2000-197445 「畜肉、魚肉およびこれらの加工品の鮮度保持剤」、特開平 10-45614 「血液凝固を阻害する食事療法食品及び
20 医薬」、特表 2001-504343 「ユビキノン含有非アルコール性飲料」を認めるのみである。特開平 3-167293 号は、ユビキノン、アスコルビン酸および天然乳化剤を同時に混合することを要件とする油脂の酸化防止方法に関し、ユビキノンを富加した補給用食品としての観点は全く記載されていない。また、特開 2000-197445 は、畜肉、魚肉およびこれらの加工品の鮮度保持剤
25 としての用途であり、添加量も少なく、実質的にユビキノンの補給を期待出来るレベルでは無い。また、特開平 10-45614 では、ユビキノン含量の高いコーン胚芽油を用い血液凝固を阻害する食事療法食品が開示されているが、ユビキノン含量は約 0.0007~0.0008 重量% (以下%と略称する) 程度であり、不足しがちなユビキノンを補給するという観点からは不十分である。また、

この場合、本来コーン胚芽油が含有しているユビキノンを利用するものであり、ユビキノンを富化する概念は記載されていない。また、特表 2001-5043 43 では、ポリオキシエチレンソルビタンモノオレエートを用いてユビキノンを可溶化する技術が開示されているが、この様な非イオン活性剤の使用は、溶血性、
5 粘膜刺激、粘膜欠損等の問題を有しております、食品への利用は躊躇される場合が多いのが実情である。

この様な状況に鑑み、生体に必要不可欠で加齢やストレスにより減少し不足しがちなユビキノンを容易に補給出来る食品としては、ユビキノンが十分に富化され、吸收性が改善され、なおかつ風味に優れた食品が考えられる。

10

発明の要約

本発明の目的は、日常生活で通常の食品と同様にユビキノンを摂取することが出来る、ユビキノンを均一に分散して含有した食品と、その用途、その製造法を提供することにある。

15 本発明者らは、従前よりユビキノンの機能に興味を持ち、ユビキノンを富化した食品の検討を続けて来たが、ユビキノンを単に食品に添加した場合、食品中でユビキノンが均一に溶解或いは分散し難く、また、一度食品に均一に溶解した場合でも、保存中にユビキノンが析出したり、食品中での局在化が起こり、食品の風味及び外観的に問題となる事が多く、満足のいく食品は得難かった。これは、
20 ユビキノンが水に不溶であること、および常温における油脂類に対する溶解度が著しく低いことに起因していた。

ところが本発明者らが銳意研究した結果、ユビキノン及び油脂を含有する組成物は、油脂の溶解度以上にユビキノンを含有させてもユビキノンを均一で安定な状態に保てることを見出した。

25 このユビキノン及び油脂を含有する組成物を用いることにより、ユビキノンを食品中に均一に溶解・分散させる事が出来、且つ食品保存中のユビキノンの析出や局在化も起こらず、風味、食感、外観が良好である事を見出し、更に検討を重ねた結果、本発明を完成するに至った。

即ち、本発明の第1は、ユビキノン及び油脂を含有する組成物を添加して得ら

れるユビキノン補給用食品に関する。好ましい実施態様としては、

(1) ユビキノンを、食品総重量に対して0.001～50重量%含有する上記ユビキノン補給用食品、

5 (2) ユビキノンを、油脂総重量に対して0.01～50重量%含有する上記ユビキノン補給用食品、

(3) 油脂は、融点が20℃以上のものである上記ユビキノン補給用食品、

(4) ユビキノン及び油脂を含有する組成物は、融点が20℃以上の油脂にユビキノンを加熱溶解し、得られた混合物を、固化若しくは可塑化するか、又は、水中油型乳化物若しくは油中水型乳化物に調製したものである上記ユビキノン補給

10 用食品、

(5) 油脂は、融点が20℃未満のものである上記ユビキノン補給用食品、

(6) ユビキノン及び油脂を含有する組成物は、融点が20℃未満の油脂にユビキノンを加熱溶解し、得られた混合物を、水中油型乳化物に調製したものである上記ユビキノン補給用食品、

15 (7) 食品は、乳、乳製品類、ソース類、パン類、パイ類、ケーキ類、菓子類、ルウ類、調味液類、氷菓類、麺類、加工食品、米飯類、ジャム類、缶詰類及び飲料類からなる群より選択される1種以上である上記ユビキノン補給用食品、

(8) さらに、抗酸化性物質及び／又は可食性色素を含有する上記ユビキノン補給用食品、並びに、

20 (9) 抗酸化性物質及び／又は可食性色素は、アスコルビルパルミテート、アスコルビルステアレート、カテキン、レシチン、トコフェロール、トコトリエノール、リグナン及びカロチノイドからなる群より選択される1種以上である上記ユビキノン補給用食品、

が挙げられる。

25 本発明の第2は、ユビキノンを含有する食用油脂組成物に関する。好ましい実施態様としては、

(1) ユビキノンを、油脂組成物総重量に対して0.01～50重量%含有する上記食用油脂組成物、

(2) さらに、抗酸化性物質及び／又は可食性色素を含有する上記食用油脂組成物、並びに、

(3) 抗酸化性物質及び／又は可食性色素は、アスコルビルパルミテート、アスコルビルステアレート、カテキン、レシチン、トコフェロール、トコトリエノール、リグナン及びカロチノイドからなる群より選択される1種以上である上記食用油脂組成物、

が挙げられる。

本発明の第3は、ユビキノンを油脂に加熱溶解し、得られた混合物を食品原料に添加する、ユビキノン補給用食品の製造方法に関する。好ましい実施態様としては、

(1) 油脂は融点が20°C以上のものであり、食品原料に添加する混合物は、ユビキノンを前記油脂に加熱溶解した後、固化若しくは可塑化されたものであるか、又は、水中油型乳化物若しくは油中水型乳化物に調製されたものである上記製造方法、並びに、

(2) 油脂は融点が20°C未満のものであり、食品原料に添加する混合物は、ユビキノンを前記油脂に加熱溶解した後、水中油型乳化物に調製されたものである上記製造方法、

が挙げられる。

また本発明の第3は、上記製造方法によって得られるユビキノン補給用食品にも関する。

本発明の第4は、ユビキノンを油脂に加熱溶解し、得られた混合物を食品原料に添加して食品を製造する、食品中でのユビキノンの析出及び／又は局在化防止方法に関する。好ましい実施態様としては、

(1) 油脂は融点が20°C以上のものであり、食品原料に添加する混合物は、ユビキノンを前記油脂に加熱溶解した後、固化若しくは可塑化されたものであるか、又は、水中油型乳化物若しくは油中水型乳化物に調製されたものである上記析出及び／又は局在化防止方法、並びに、

(2) 油脂は融点が20°C未満のものであり、食品原料に添加する混合物は、ユ

ビキノンを前記油脂に加熱溶解した後、水中油型乳化物に調製されたものである上記析出及び／又は局在化防止方法、
が挙げられる。

本発明の第5は、上記食品を摂取する、ユビキノンの補給方法に関する。

5 以下に本発明を詳述する。

発明の詳細な開示

本発明は、ユビキノン及び油脂を含有する組成物を添加して得られるユビキノン補給用食品である。ユビキノンと油脂を別々に添加して得られる食品や、ユビ
10 キノンは含有するが油脂を含有しない食品では、ユビキノンを食品中に均一に溶
解・分散させる事が出来ず、食品保存中のユビキノンの析出や局在化を防止する
ことは困難である。

本発明の食品は、ユビキノンを食品総重量当たり、下限が好ましくは0. 00
0 1重量%、更に好ましくは0. 001重量%、更により好ましくは0. 01重量%、
15 最も好ましくは0. 1重量%、上限が好ましくは50重量%、更に好ましくは10重量%、更により好ましくは5重量%、最も好ましくは2重量%富化し
たものである。ユビキノンの含量が総食品重量当たり0. 0001重量%未満では、加齢やストレスにより不足しがちなユビキノンの補充の目的には十分でない
場合があり、50重量%超では実質的にユビキノンを食品中に溶解・分散させる
20 ことが困難となる場合がある。

本発明の食品は、ユビキノンを油脂総重量に対して、下限が好ましくは0. 0
1重量%、より好ましくは0. 1重量%、上限が好ましくは50重量%、より好
ましくは20重量%含有するものである。ユビキノンの含量が油脂総重量当たり
0. 01重量%未満では、加齢やストレスにより不足しがちなユビキノンの補充
25 の目的には十分でない場合があり、50重量%超では実質的にユビキノンを食品
中に溶解・分散させることが困難となる場合がある。

本発明で用いる油脂は、融点20℃以上であることが好ましく、さらに好ましくは25℃以上である。融点が20℃未満の場合には、保存中に固液分離が生じてユビキノンを均一にさせることが困難となる場合がある。しかし融点が20℃

未満の油脂も好適に使用することができ、その場合には、ユビキノンを含有する油脂組成物を水中油型乳化物とすることが好ましい。

本明細書においては、融点20℃以上の油脂（すなわち20℃で固体の油脂）を「固体脂」、融点20℃未満の油脂（すなわち20℃で液体の油脂）を「液体脂」ともいう。

本発明においては、本発明の食品における油脂が2種類以上の混合物である場合、当該混合物の融点が20℃以上の場合は固体脂、当該混合物の融点が20℃未満の場合は液体脂とする。

油脂の融点は上昇融点を意味する。上昇融点は基準油脂分析法（（社）日本油化学会、1996年度版）に記載の方法で測定することが出来る。

本発明の食品中のユビキノン含量は、食品をそのまま或いは粉碎、乾燥等の適切な前処理を行った後、食品の乾燥重量当たり、例えば約10倍容の、適切な有機溶媒、例えば、クロロホルム／メタノール（2／1：容量比）等を用いて約1時間程度の攪拌溶解を2～3回行った後、抽出液の溶媒を溜去し、得られた抽出油をヘキサン、或いはエタノール等に溶解後、第13改訂日本薬局方解説書（廣川書店、1996年）記載のユビデカレノン（ユビキノンの別称であり、コエンザイムQ10として知られる）の定量法を参照して、高速液体クロマトグラフィー法により測定することにより定量する事が出来る。

本発明の食品の種類としては、その成分、組成、製造法、形態、用途等において特に制限を受ける事は無く、任意に選択し得るが、ユビキノンが疎水性の溶媒に良く溶解する特性を有する事より、油分含量の高い食品の方がユビキノンを高含量でしかも食品中に均一に富化させ易く、有利である。本発明における好適な食品としては、食品用油脂類（食用油脂組成物）、乳又は乳製品類、ソース類、パン類、パイ類、ケーキ類、菓子類、ルウ類、調味液類、氷菓類、麺類、加工食品、米飯類、ジャム類、缶詰類、飲料類が挙げられる。

本発明にいう「食品用油脂類」とは、トリグリセリド、ジグリセリド、リン脂質等を主成分とする植物由来、動物由来、微生物由来、魚貝類由来等の油脂、及び、これらの油脂を硬化、分別、エステル交換又はこれらを適宜組み合わせて加工した食用精製加工油脂、マーガリン、調製マーガリン、ファットスプレッド等

のマーガリン類、バター類、ショートニング類等が挙げられる。これらの油脂の用途としては、そのまま食する、他の食品の加工用に使用する、或いは、他の食材と共に食する形態等が挙げられる。例えば、フライ用調理油、炒め用調理油、サラダ用調理油等の調理油類、スプレー油類といった形態が挙げられる。

5 本発明にいう「乳又は乳製品類」とは、牛乳、特別牛乳、殺菌山羊乳、部分脱脂粉乳、加工乳等の乳や、クリーム、ホイップクリーム、バター、バターオイル、チーズ、チーズフード等のチーズ類、濃縮ホエイ、アイスクリーム類、濃縮乳、ホワイトナー、無糖練乳、加糖練乳、全粉乳、クリームパウダー、ホエイパウダー、たんぱく質濃縮ホエイパウダー、バターミルクパウダー、加糖粉乳、調製粉乳、発酵乳、乳酸菌飲料、乳飲料等の乳製品やヨーグルト等の酸乳、ケフィールやクーミス等のアルコール発酵乳等の発酵乳類等のいわゆる乳等省令に定められた「乳」、「乳製品」、「乳または乳製品を主原料とする食品」はもとより、合成クリーム、チーズ様食品をも包含する。

10 本発明にいう「ソース類」としては、ホワイトソース、クリームソース等の温製ソースやマヨネーズ、サラダドレッシング等の冷製ソースが挙げられる。

15 本発明にいう「パン類」としては、食パン、ロールパン、菓子パン、調理パン、蒸しパン、ドーナツ等が挙げられる。

20 本発明にいう「パイ類」としては、アップルパイ、マロンパイ、パンプキンパイ、ミートパイ等が挙げられる。

25 本発明にいう「ケーキ類」とは、ショートケーキ、ロールケーキ等のスポンジケーキ類やパウンドケーキ、フルーツケーキ等のバターケーキ類や、シュークリーム、エクレア等のシュー菓子類やサバラン等の発酵菓子類やレアチーズケーキ等のクリームゼリーケーキ類やプディング、プラマンジェ等のデザート菓子類等を包含する。

30 本発明にいう「菓子類」とは、和菓子類、スナック菓子類、チョコレート及びチョコレート菓子類、油菓子類、ガム類、キャンディー類を包含し、更に具体的に、和菓子類としては、もち、おはぎ等のもち物や、蒸しまんじゅう、蒸しようかん、ういろう等の蒸しものや、どら焼き、きんつば、まんじゅう、月餅、カステラ等の焼き物や、ようかん等の流し物や、ねりきり、ぎゅうひ等の練り物等の

生菓子類や、石衣等のあん物や、もなか等のおか物や、ちゃつう等の焼き物等の半生菓子類や、らくがん等の打ち物や、甘納豆等の干菓子類等が挙げられ、スナック菓子類としては、クッキー、ビスケット、クラッカー、ポテトチップス、コーンチップ、プレッツエル、ナッツ、ポップコーン、シリアル、あられ、おかき、煎餅等の米菓類等が挙げられ、油菓子類としてはかりんとう等が挙げられ、ガム類としては、板ガム、風船ガム、糖衣ガム、シュガーレスガム等が挙げられ、キャンディー類としては、ドロップ、ブリットル等のハードキャンディー、キャラメル、ヌガー等のソフトキャンディー、コンペイトウ、ゼリービーンズ等の掛け物、ラムネ菓子等の清涼菓子等が挙げられる。

10 本発明にいう「ルウ類」としては、ルウブラン（白色ルウ）、ルウブロン（クリーム色のルウ）、ルウブラン（褐色ルウ）等が挙げられる。

本発明にいう「調味液類」とは、食品の調理・加工時に風味、保存性、加工性等を改善するために用いる液全般を指し、具体的には、ごまだれ、ウナギのたれ、焼き肉のたれ等のたれ類やピックル液類等が挙げられる。

15 本発明にいう「氷菓類」としては、アイスクリーム、シャーベット、ソルベ、アイスキャンデー等が挙げられる。

本発明にいう「麵類」とは、穀粉を水等と捏ねた生地を成型したものを言い、具体的には、小麦粉を主原料としたうどん、そうめん、ひやむぎ、中華麺等やデュラムセモリナを用いたスペゲッティーやマカロニ等のパスタ、蕎麦粉を用いたそば、米粉を用いたビーフン、澱粉を使用したはるさめ等が挙げられる。

20 本発明にいう「加工食品」としては、ハム、ソーセージ、ベーコン等の加工肉製品類、蒲鉾、ちくわ等の水産練り製品類、コロッケ、トンカツ、フライドポテト、エビフライ等のフライ食品類、冷凍アントレ類、畜産冷凍食品、農産冷凍食品等の冷凍食品類等が挙げられる。

25 本発明にいう「米飯類」としては、いわゆる飯をはじめ、炊き込みご飯、炒飯、すし飯等が挙げられる。

本発明にいう「ジャム類」とは、ミカン、イチゴ、リンゴ、ブドウ、キウイ、イチジク等の果物、カボチャ等の野菜、バラアドの花弁等を原料とし、糖類と共に適度な濃度まで煮詰めたものを言う。

本発明にいう「缶詰類」としては、肉、魚肉、果物、野菜やこれらの加工品等を缶や瓶に詰めたものが挙げられる。

本発明にいう「飲料類」としては、豆乳、ココナッツミルク、ミルクコーヒー、カフェオレ等のコーヒー系飲料、ミルクティー、チャイ等の紅茶系飲料、クリーミュソーダ、コーラ飲料等の炭酸飲料、レモン果汁入りミネラルウォーター等のフレーバードウォーター、スポーツ飲料、各種野菜や果物を原材料とした野菜ジュース、果汁飲料等が挙げられる。

本発明においては上記に例示した油脂含有食品の他に、該油脂含有食品をそのまま或いは、塗布、トッピング、挟む、包餡、練り込み等を含む多次加工したもののをも包含する。

本発明の食品は、ユビキノンと共に抗酸化性物質及び／又は可食性色素が添加されても良い。抗酸化性物質及び／又は可食性色素の添加は食品中のユビキノンの熱安定性や光安定性を向上すると共に食品の風味の維持に有用である。本発明における抗酸化性物質及び／又は可食性色素の例としては、アスコルビルパルミテート、アスコルビルステアレート、カテキン、レシチン、トコフェロール、トコトリエノール、リグナン；アスタキサンチン、リコピン等のカロチノイドが挙げられ、これらを使用することが好ましい。更に好ましくは、アスコルビルパルミテート、カテキン、レシチン、トコフェロールである。市販の抗酸化剤及び／又は可食性色素製剤を用い得る。本発明において、これら抗酸化性物質及び／又は可食性色素の添加は、食品総重量当たり、0.001～10重量%が好ましく、更には0.005～1重量%が好ましい。0.001重量%未満では抗酸化性物質及び／又は可食性色素の添加効果が十分でない場合があり、10重量%を越えての添加は、食品の風味や色合いに問題が生じる場合がある。本発明の食品にユビキノンと共にこれらの抗酸化性物質或いは可食性色素を添加する場合、その方法には特に制限は受けず、ユビキノン及び油脂を含有する食材と共に混合攪拌し溶解しても良い。また、抗酸化性物質或いは可食性色素を予め油脂組成物に添加・攪拌することにより均一に溶解或いは分散させた後、そのまま或いは食品に添加することにより富化しても良い。

本発明は、ユビキノンを富化した食品を摂取することによるユビキノンを補給

する方法にも関する。本発明の方法では、上記本発明のユビキノンを富化した食品を通常の食品と同様に摂取すれば良く、一日当たり、好ましくはユビキノンを0.1～500mg、更に好ましくは1～200mg程度摂取出来る量の食品を摂取する以外、その摂取の方法、容量、摂取の頻度により特に制限を受ける事はない。0.1mg未満では期待する効果が弱い場合があり、500mgを越えての摂取は効果の面では問題ないが経済的でない場合がある。

本発明の方法は、ヒトに適用することができる。

本発明の方法は、従来の医薬品やサプリメント等による方法に比較し、簡便で、摂取の持続が容易な事、摂取量を状況に応じ適宜調整出来ること、多様な個々人の味覚に関する好みに対応可能な点が優れている。また、ユビキノンは単独で摂取するよりも食品成分、特に油脂成分と同時に摂取することにより吸收性が良くなる傾向があり、その点でも優れた方法である。

本発明の食品の製造法に関し説明する。

本発明の食品はその製造法により特に制限を受ける事は無く、食品の製造工程において必要量のユビキノンと油脂を含有する組成物を添加することにより実施し得る。より好ましい実施の形態としては、食品の製造過程において、油脂と共にユビキノンを添加し十分攪拌すれば良い。そうする事により容易にユビキノンを高含量で、均一に含有する食品を製造し得る。また、油脂と共に加える事により、保存中にしばしば認められるユビキノンの析出や局在化を避ける事が可能であり、風味・食感、外観上好ましい食品を得ることが出来る。更に好ましくは、ユビキノンを油脂類に加熱溶解後、冷却して均一化した油脂組成物を用いて食品を製造することにより、ユビキノンの局在化を完全に防止することが出来る。利用し得る油分を含む食材としては特に制限を受けないが、好ましくは油分含量が1%以上の食材が好ましい。

好ましい食材の例としては、食用油脂、バター、マーガリン、ファットスプレッド、ショートニング、チーズ、チーズフード、チーズ様食品、チョコレート及びチョコレート含有食材、魚肉、獣肉等の肉類及びその加工品、鶏卵及び液卵等の卵加工品、大豆、コーン、落花生等の豆類及びその加工品、ゴマ、小麦、米等の穀類等を粉末化或いは加工した食材、例えば、小麦粉、大麦粉、ライ麦粉、米

粉、そば粉、プレミックス粉、小麦胚芽、豆乳、等が挙げられる。

好ましい食用油脂の例としては、一般に通常食用に供される動植物油脂であれば特に制限を受けて、例えば菜種油、大豆油、ヒマワリ種子油、綿実油、落花生油、米糠油、コーン油、サフラワー油、オリーブ油、カポック油、胡麻油、月

5 見草油、パーム油、シア脂、サル脂、カカオ脂、ヤシ油、パーム核油等の植物性油脂並びに乳脂、牛脂、豚脂、魚油、鯨油等の動物性油脂、これらを水添やエステル交換等により加工した食用油脂等が例示でき、また、例えば、中鎖脂肪酸トリグリセリド（MCT）：例えば、6～12、好ましくは8～12の炭素原子を有する脂肪酸のトリグリセリド、脂肪酸の部分グリセリド（モノグリセリドやジグリセリド）：例えば、6～18、好ましくは6～12の炭素原子を有する脂肪酸のモノグリセリドやジグリセリド等も上記油脂に含まれる。これらの食用油脂は未精製油であれ精製油であれ特に制限は受けないが、一般的の食用油脂と同等に調理あるいはフライ用にも使用可能な油脂を提供するためには、170℃以上の発煙点を有する食用油脂を用いても良い。

15 本発明の食品の製造において使用するユビキノンと油脂を含有する組成物において、これらが完全に溶解している事は必須ではないが、最終的に得られる食品の風味、舌触り、外観及びより高い吸収性を得るために、ユビキノンが油脂に完全に溶解している事が好ましい。従って、ユビキノンを食用油脂中に溶解する場合、食用油脂をその融点以上に加温しながら、ユビキノンを不均一にならないように注意しながら添加・攪拌し溶解するのが好ましい。

また、油脂への溶解度以上にユビキノンを富化する場合において、固体脂を用いる場合は、加熱溶解した後に冷却操作によって固化または捏和による可塑化、あるいは水中油型乳化物とすることが好ましい。加熱温度は、固体脂およびユビキノンの融点以上が好ましく、より好ましくは50～70℃である。冷却操作は、25 均一性を高める為に、急冷条件下で20℃以下に冷却することが好ましい。また、上記固化及び可塑化した油脂組成物は、無水物であってもよく、油中水型乳化物であってもよい。いずれでも、連続相である固体脂中にユビキノンを偏りなく含有させることが可能となる。また、通常用いられる乳化剤等を添加してもよい。

一方、油脂への溶解度以上にユビキノンを富化する場合において、液体脂を

用いる場合は、加熱溶解した後に冷却操作によって水中油型乳化物とすることが好ましい。加熱温度は、ユビキノンの融点以上が好ましく、より好ましくは50～70℃であり、冷却操作によって速やかに10℃以下に冷却するのが好ましい。水中油型乳化物とすることで、連続相である水中に均一に分散した油滴中にユビキノンを偏りなく含有させることが可能となる。また、水中油型乳化物に通常用いられる乳化剤や増粘剤等を添加しても良い。水中油型乳化物ではなく液体脂単独の油脂組成物の場合、冷却直後においてはユビキノンは均一に分散しているが、時間の経過とともに固液分離が進行し、ユビキノンの偏りが生じてしまう可能性が高い。

この様にして調製された食用油脂組成物を用いてユビキノンが富化された食品を製造する場合は、当該食品の製造過程の油脂を添加する工程において、上記のユビキノンを富化した食用油脂組成物を添加すれば良い。特に、パン、焼き菓子等の小麦粉利用食品の製造においては練り込み特性が必要であるため、固体脂を用いて得られる可塑性油脂組成物が好ましい。また、水中油型乳化組成物を水相側へ添加しても良く、この場合は液体脂を用いることが可能となる。

本発明の食品は、ユビキノン、並びに、上記の抗酸化性物質、可食性色素以外に、ユビキノンの溶解性、安定性、吸収性に悪影響を与えない限り、通常の食品に添加される添加物を任意に加えうる。例えば、ビタミンA、ビタミンD等のビタミン類、食塩等の無機塩、砂糖等の甘味料、乳タンパク等の食用タンパク質、CMC等の増粘剤、ブチルヒドロキシトルエン（BHT）等の抗酸化剤、ソルビン酸及びそのカリウム塩、安息香酸及びそのナトリウム、カリウム塩等の保存料、果実、及びチョコレート等の添加物が挙げられる。

本発明の食品製造に使用するユビキノンは、合成法もしくは醸酵法等、いかなる公知の方法で製造されたものでも使用し得る。また、固体状であれ溶液状であれ、結晶状であれ、アモルファス状であれ使用し得る。また、サプリメントとして販売されているユビキノンを用いる事も可能である。

本発明の食品の製造に使用するユビキノンは、その純度により特に制限を受ける事はないが、純度0.01%以上が好ましく、更には1%以上、最も好ましくは10%以上である。また、精製品の他に、粗精製品でも使用しうる。一般に精

製ユビキノンは高価な物質であり、これらを富化した食品は高価にならざるを得ないが、粗精製品を用いる事により、安価なユビキノンを富化した食品を製造する事が出来る。また、食品は本来多様な物質の混合系であり、富化するユビキノンが安全であれば精製品である必要は無い。粗精製品の例としては、晶析、溶媒抽出、カラムクロマトグラフィー等により部分精製された製品が挙げられる。または、粗精製品の一例として、ユビキノンを含有する微生物菌体に含まれるユビキノンを用いても良い。ユビキノンを含有する微生物の例としては、酵母、糸状菌、細菌、藻類原生動物等が挙げられる。

本発明に用いるユビキノンは、動植物をはじめ多くの食品中に含まれている物質であり安全性は確認されている。粗精製品或いはユビキノンを含有する菌体を用いる場合は、殺菌等を行い、安全衛生上食品として有害な物が混入しない手立てを講じたり、菌体を破碎する等、吸收性向上の手立てを講じると良い。

以下に、本発明の代表的な食品の製造法を概説する。

本発明の食品用油脂類は、食用油脂として一般に調理油として用いられている油脂、例えば菜種油、大豆油、ヒマワリ種子油、綿実油、落花生油、米糠油、コーン油、サフラワー油、オリーブ油、カポック油、胡麻油、月見草油、パーム油、シア脂、サル脂、カカオ脂、ヤシ油、パーム核油等の植物性油脂並びに乳脂、牛脂、豚脂、魚油、鯨油等の動物性油脂、これらを水添やエステル交換等により加工した油脂、中鎖脂肪酸トリグリセリド（MCT）：例えば、6～12、好ましくは8～12の炭素原子を有する脂肪酸のトリグリセリド、脂肪酸の部分グリセリド（モノグリセリドやジグリセリド）：例えば、6～18、好ましくは6～12の炭素原子を有する脂肪酸のモノグリセリドやジグリセリド及びこれらの混合物等をその融点以上の温度で加温溶解し、攪拌しながら所望量のユビキノンを不均一にならないようゆっくりと添加溶解した後、冷却することにより製造しても良い。

本発明のスプレー油は、上記の調理油の製造に用いる油脂と同様の食用油脂を用い、同様の方法で製造しうる。また、更に必要に応じ、スプレー油に風味を付与するため、油溶性香料、油溶性ビタミン、シーズニングオイル、保存料及び他の食材、例えば、塩、畜肉、鳥肉、魚介類、クリーム、バター、チキン、オニオ

ン、ガーリック、バジル等を通常のミキサーで混合或いは溶解することにより製造しても良い。本発明のスプレー油を使用する場合は、一般的なスプレー油と同様に使用しても良い。

本発明のバターの製造は、牛乳より常法により調製されたクリーム分を常法によりチャーニングしながら、所望量のユビキノン粉末、或いは食用油脂に均一に溶解或いは分散したユビキノンを徐々に添加攪拌した後、得られたバター粒を冷水で洗浄後、食塩を2.5%程度加え、更に練り合わせる事により製造しても良い。

本発明のマーガリン類やショートニング類は、一般的なマーガリン類、ショートニング類の製造において用いられる油脂とユビキノンを共に混合・溶解・攪拌し、必要により乳化することにより製造し得る。例えば、通常の食用油脂とユビキノンを溶解した食用油脂と水に、乳化剤、必要に応じて各種添加剤を加え、乳化タンクで60°Cで乳化した後、15°Cまで急冷捏和を行うことでマーガリンを得ることが出来る。また、例えば、通常の食用油脂と同時に微粉末化した精製ユビキノン、或いは粗精製のユビキノンを加え上記と同様に操作することによりマーガリンを得ることも出来る。一方、例えば、通常の食用油脂にユビキノンを富化した油脂を添加し、60°Cで、ホモミキサーを用いて約20分間乳化したのち、15°Cに急冷捏和することでショートニングを得ることが出来る。

本発明の合成クリームの製造は、所望量の上記のユビキノンを溶解・分散した食用油脂とナタネ硬化油、ヤシ硬化油等の高融点油脂、乳化剤を70°C程度で攪拌して加温溶解した油相部を、脱脂乳、溶解塩、乳化剤等を加え70°C程度に加温乳化した水相部に加え、65°C程度に保持しつつ予備乳化し、この混合物をホモジナイザーに通し、加圧ホモゲナイズし、殺菌処理した後圧力にて均質化した後、5°C程度まで冷却した後、5°C、24時間程度エージングすることにより実施しうる。

本発明の濃縮乳の製造は、所望量の上記のユビキノンを溶解・分散した食用油脂と無脂肪乳固形成分、呈味性無脂肪乳成分、増粘剤、乳化剤を水に溶解した水相部を合わせホモジナイザーにて乳化させた後、滅菌処理し、均質化することにより実施しうる。

本発明のホワイトナー類の製造は、所望量の上記のユビキノンを溶解・分散した食用油脂と乳化剤を混合、乳化し油相部と脱脂粉乳、溶解塩、増粘剤、乳化剤、甘味剤、ビタミン類、抗酸化剤等を加えて溶解した水相部を攪拌して予備乳化した後、加圧下でホモゲナイズすることにより実施しても良い。

5 本発明のサラダドレッシングの製造は、添加する油脂として、所望量の上記のユビキノンを溶解・分散した食用油脂を用いる事により実施しうる。例えば、マヨネーズの場合、食酢、食塩、砂糖、調味料、水の適量を混合器等で攪拌混合して得られる水相部に、上記のユビキノンを溶解・分散した食用油脂と卵黄等の乳化剤を添加し混合した油相部を少しずつ加えながら攪拌し予備乳化した後、コロ10 イドミル等を用いて仕上げ乳化を行う事により製造し得る。また、通常のドレッシングに使用される食用油脂と他の成分と一緒に固体状のユビキノンを添加し、攪拌乳化することにより実施し得る。

本発明のピックル液の製造は、添加される油脂として、上記のユビキノンを溶解・分散した食用油脂を用いる事により製造しうる。また、通常のピックル液製15 造に使用される食用油脂及び他の成分と一緒に固体状のユビキノンを添加することにより実施し得る。例えば、60℃まで加温・攪拌した乳化剤を溶解した水相部に、上記のユビキノンを溶解・分散した食用油脂と乳化安定剤を60℃で加温攪拌して調製した油相部を徐々に添加して粗乳化した後、乳化液の品温を50℃以下に下げてから、圧力式ホモジナイザー等の均質機で微細乳化する。その後プレートクーラー等の熱交換機で急速冷却して実施し得る。

本発明のチョコレートの製造は、菓子用チョコレートと所望量の固体又は上記食用油脂に溶解したユビキノンを混合後、湯煎でゆっくりと40～50℃に攪拌し完全に溶解後、30～32℃まで冷却し、型に流して固化させても良い。

本発明のパン類、ケーキ類、パイ類の製造は、その製法に特に限定はなく、一般的なパン類、ケーキ類、パイ類の製造において、油脂を加える過程で、所望量の上記のユビキノンを溶解・分散した食用油脂を一部或いは全量置き換えて添加することにより、或いは上記のユビキノンを富化したマーガリン類、ショートニング類を一部或いは全量置き換えて添加することにより、或いは一般的な油脂と同時に、或いは油分を含有する食材と一緒に、固体状、或いは菌体に含まれるユ

ビキノンを添加することにより製造しても良い。また、ユビキノンを富化したパンを製造する場合には、パンの総重量当たり、油脂として1～40%の添加が好ましい。1%未満及び40%超ではパンとしての風味、食感が劣る場合がある。

本発明のルウ類の製造は、一般的なルウ類の製造において、油脂を加える過程で、所望量の上記のユビキノンを溶解・分散した食用油脂を一部或いは全量置き換えて添加することにより、或いは上記のユビキノンを富化したマーガリン類、ショートニング類を一部或いは全量置き換えて添加することにより、或いは一般的な油脂と同時に、或いは油分に富む食材と一緒に、固体状或いは菌体に含まれるユビキノンを添加し、他の食材、添加剤を用い、これらを混合した形態として加熱処理することにより行う事が出来る。加熱処理の方法としては、飽和水蒸気による処理、加圧加熱処理、焙煎処理、油を用いた焙煎処理を含む常圧による加熱処理等、いずれの方法により行ってもよいが、油を用いた焙煎処理が簡便であるため好ましく、ルウに色を付けない時は110～120℃、短時間、クリーム色に着色させる場合は、最終温度140～150℃を目処に、褐色ルウを調製する場合は最終温度190℃になるように十分炒める事により実施しても良い。

本発明の麺類の製造は、一般的麺類の製造において、油脂を加える過程で、所望量の上記のユビキノンを溶解・分散した食用油脂を一部或いは全量置き換えて添加することにより、或いは上記のユビキノンを富化したマーガリン類、ショートニング類を一部或いは全量置き換えて添加することにより、或いは一般的な油脂と同時に、或いは油分を含有する食材と一緒に、固体状、或いは菌体に含まれるユビキノンを添加し実施し得る。例えば、まず、本発明のユビキノンを溶解・分散した食用油脂に乳化剤を添加し、加熱、溶解し油相部を調製し、別途、水、糖類等を添加し、加熱して調製した水相部を混合後、ホモミキサー等の混合機で乳化し、更に攪拌・混合しながら冷却し乳化して得られる乳化液を、小麦粉類と混合後、生地をねかし、ロール圧延後、切歯し生麺を得、それを乾燥或いはゆでる事により得られる。

本発明のフライ食品類の製造は、本発明のユビキノンを溶解・分散した食用油脂或いは本発明のユビキノンを富化した調理油、或いは本発明のユビキノンを富化したショートニング類を高温、例えば、150～220℃で、コロッケ、エビ、

トンカツ等の食材をフライすることにより実施しても良い。

本発明のチーズフード及びチーズ様食品の製造は、本発明のユビキノンを溶解・分散した食用油脂を用いる以外、一般的なチーズフード及びチーズ様食品の製造法により製造することが出来る。その場合、通常の製造法で油脂を添加する時期に本発明のユビキノンを溶解・分散した食用油脂を単独或いは他の一般的な油脂と配合して添加して実施しても良い。例えば、ナチュラルチーズ、或いはプロセスチーズと本発明のユビキノンを富化した食用油脂組成物と食塩、溶解塩、水の所定量をステファンクッカー等の容器に投入し、蒸気を投入しながら加温混捏した後、冷却することにより、ユビキノンを富化したチーズフードを得ることが出来る。また、例えば、チーズ加工食品の場合、食品総重量に対し51%未満のナチュラルチーズ或いはプロセスチーズと本発明のユビキノンを溶解・分散した食用油脂、食塩、ポリリン酸ナトリウム等の溶解塩、及び水の所定量をステファンクッカー等の釜に投入し、攪拌しながら直接蒸気を投入して加温、溶融、混捏した後、容器に入れ冷却することにより得ることが出来る。また、イミテーションチーズの場合、釜に水、溶解塩、食塩を加温溶解後、レンネットカゼイン、脱脂粉乳等の脱脂蛋白、米澱粉、コーンスターク、アラビアゴム、カラギーナン等の増粘剤を加え加熱攪拌し、更に酸味剤等と水を加え加熱攪拌した後、本発明のユビキノンを富化した食用油脂組成物を加え、更に加熱攪拌し、チーズフレーバー、着色料、抗酸化剤等を加え混練りし、最後に、高圧ホモジナイザーにかける事により得ることが出来る。

本発明の飲料の製造は、本発明のユビキノンを溶解・分散した食用油脂を均一に分散、乳化、或いは溶解させた後、飲料原料に添加する事により製造し得る。飲料原料としては、牛乳、特別牛乳、殺菌山羊乳、加工乳、発酵乳、コーヒー飲料、紅茶飲料、果汁飲料、炭酸飲料、果実飲料、乳性飲料、野菜ジュース、豆乳、ココナッツミルク、クリーム等が挙げられる。また、本発明の飲料において、本発明のユビキノンを溶解・分散した食用油脂を用いる場合、該油脂をW/O型乳化物とした後、そのまま、或いは、飲料原料に添加することにより製造することが出来る。例えば、水に、乳化剤、乳化安定剤、親水性酸化防止剤を添加し、攪拌により水中に分散させた後、加温溶解する。他方、本発明のユビキノンを溶解

・分散した食用油脂の中に乳化剤と親油性抗酸化剤を添加し、攪拌により油中に分散させた後、加温溶解する。乳化の方法については特に限定はなく、一般的に用いられている、水相に油相を流なし攪拌や圧力により機械的に乳化する方法や、膜の微細な空隙から水相中に油相を押し出し乳化する膜乳化法等が挙げられ、どちらの方法でも十分な性能を持つ乳化物を得ることができる。このようにして得られた乳化物は、そのまま乳化物含有飲料に使用しても良いが、乳化物の状態で長期間保存する必要がある場合は殺菌を行っても良い。殺菌に要する温度、保持時間等の条件は特に限定されるものではないが、pHが中性の場合には120～140°C、4～30秒のUHT殺菌を行うことが望ましい。殺菌された乳化物は無菌容器に無菌的に充填し、冷蔵状態で保存される。飲料原料への、乳化物の混合量は特に限定されるものではないが、乳化物含有飲料中に、1～80%、好ましくは2～50%含有される。1%未満では均一系の維持が難しく、また、80%を超えると風味やコストの点で現実的ではない。このようにして得られた乳化物含有飲料は、必要に応じpHを調節し、抗菌剤、甘味料を添加した後、缶、瓶、パウチ等の加熱殺菌可能な容器に充填、密封した後、120～126°C、15～60分のレトルト殺菌を行うことができる。

本発明のその他の食品においても、その製法に特に限定はなく、一般的な製造において、油脂を加える過程で、所望量の上記のユビキノンを溶解・分散した食用油脂を一部或いは全量置き換えて添加することにより、或いは上記のユビキノンを富化したマーガリン類、ショートニング類を一部或いは全量置き換えて添加することにより、或いは一般的な油脂と同時に固体状、或いは菌体に含まれるユビキノンを添加することにより製造しても良い。

発明を実施するための最良の形態

以下、実施例にて本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれらに何ら限定されるものではない。尚、「部」「%」は、全て重量基準である。

(実施例1) ユビキノンを富化した調理油の製造(1)

5 L容ビーカー内に大豆油(商品名:大豆ゴールデンサラダ油、吉原精油(株

5) 製、融点は0℃以下) 999 gを取り、室温でゆっくり攪拌しながら、ユビキノン(鐘淵化学工業(株) 製、純度99.2%) 1 gを不均一にならないように少しづつ添加し引き続きゆっくり攪拌・溶解することにより、ユビキノンを0.1%富化した調理油を得た。得られた油は、透明燈色の油で、風味も良く、フライ油、炒め油として使用しても何ら問題無かった。

(実施例2) ユビキノンを富化した調理油の保存性

10 実施例1の1%ユビキノンを富化した大豆油を透明ガラス瓶2本に分注し、一方に、アスコルビルパルミテート及びd- α -トコフェロール合剤(商品名:理研EC-100、理研ビタミン(株) 製) 0.1%、及び、アスタキサンチン(商品名: Astax-S、イタノ食研(株) 製) 0.1%を添加し、他方は対照として無添加とした。室温下、明所で4週間放置し、1週間毎に残存するユビキノン量を測定した。ユビキノンの測定は、それぞれの油脂をヘキサンで100倍希釈後、その10 μ lを、第13改訂日本薬局方解説書(廣川書店、1996年)記載のユビデカレノン(ユビキノンの別称)の定量法に従い、カラムとしてYMC-Pack R&D ODSを用い、高速液体クロマトグラフィーにより分析した。結果、対照調理油中のユビキノン量が、30日後には約60%まで減少したのに対し、アスコルビルパルミテート及びd- α -トコフェロール合剤及びアスタキサンチンを添加した調理油中のユビキノンは75%以上残存し、抗酸化物質及び可食性色素の添加効果が認められた。

(実施例3) マーガリンの製造

5 L容ビーカー内に、硬化綿実油組成物(商品名:スノーライト、鐘淵化学工業(株) 製、融点32℃) 99%とユビキノン(鐘淵化学工業(株) 製、純度99.2%) 1%を60~65℃で加温しながらゆっくりと攪拌溶解して得た油脂組成物83.5部と水16.5部を60~65℃で、乳化タンクで15分間、攪拌乳化したのち、15℃に急冷捏和し、風味的にも物性的にも問題のないユビキノンを富化したマーガリンを得た。また、10℃に急冷捏和を行った後、レストチューブを通して、シート成型器にて折り込み用マーガリンを得た。いずれのマー

ガリンも外観及び内層においてもユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

(実施例 4) ファットスプレッドの製造

5 水相成分として、ゼラチン2部、食塩1.5部、水44部を60℃に加温した。油相成分として60℃に加温した大豆硬化油（融点40℃）25部、大豆油（商品名：大豆ゴールデンサラダ油、吉原製油（株）製、融点は0℃以下）15部、ユビキノン0.5部、モノステアレート0.3部、レシチン0.2部、ビタミンA0.02部、 β -カロチン0.002部、トコフェロール0.3部を混合し、
10 60℃に加温した後、攪拌しつつ水相成分を徐々に添加し、乳化物を得た。さらにこの乳化物をコンビーネーターで急速に冷却した後、ユビキノンを富化したファットスプレッドを得た。このファットスプレッドは、通常のファットスプレッドと比べて、ユビキノンに由来する着色以外、性状、安定性とも大きな違いはなく、さらには口あたりもなめらかで風味も良好であり、外観及び内層においてもユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

(実施例 5) ショートニングの製造

大豆硬化油（融点40℃）60部、ナタネ油（融点は0℃以下）40部、ユビキノン製造の中間精製物（ユビキノン純度80%）5部、レシチン0.3部、
20 モノステアレート0.3部、抗酸化剤としてビタミンEを5ppm加え、60℃で、ホモミキサーを用いて15分間均質化したのち、15℃に急冷捏和し、風味的に問題のないユビキノンを強化したショートニングを得た。このショートニングは、外観及び内層においてもユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

25

(実施例 6) 食パンの製造

小麦粉70部にイースト2部、イーストフード0.1部、次いで水40部を加えてミキサーで混合し中種生地を作り（捏上温度24℃）、4時間予備発酵をさせた後、小麦粉30部、砂糖5部、実施例3で製造したユビキノンを強化した

マーガリン6部、食塩2部、脱脂粉乳3部、水23部を加え本捏生地を作製した後、フロアタイム25分後分割し、ベンチタイム25分後、成形し、ホイロ38°C・50分、焼成180°C・35分で食パンを製造した。得られた食パンは、風味、色合いともに良好であった。また、パンの外観及び内層においてもユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

(比較例1) 食パンの製造

小麦粉70部にイースト2部、イーストフード0.1部、ユビキノン（鐘淵化学工業（株）製、純度99.2%）0.5部、次いで水40部を加えてミキサーで混合し中種生地を作り（捏上温度24°C）、4時間予備発酵をさせた後、小麦粉30部、砂糖5部、市販のマーガリン（鐘淵化学工業（株）製、ネオマーガリン）6部、食塩2部、脱脂粉乳3部、水23部を加え本捏生地を作製した後、フロアタイム25分後分割し、ベンチタイム25分後、成形し、ホイロ38°C・50分、焼成180°C・35分で食パンを製造した。得られた食パンの内層は、所々にユビキノンの局在化に起因する黄色の色むらが確認された。

(実施例7) 食卓ロールパンの製造

強力粉70部、上白糖2部、イースト2.5部、イーストフード0.1部、水40部を混合し、4分、捏上温度24.5°Cで捏ね上げた後、30°C下3時間発酵させ中種を製造した。次いで、強力粉20部、薄力粉10部、上白糖10部、食塩1.6部、脱脂粉乳3部、実施例3で作製したユビキノンを強化したマーガリン15部を加え、全卵12部、水6部を加え、6分28°Cになるように捏上げた後、室温でフロアタイム40分で発酵を行い、分割し、ベンチタイム10分の後成形し、ホイロ38°C・50分、焼成245°C・11分で食卓ロールパンを製造した。得られた食卓ロールパンは、風味も、色合いも良好であった。また、パンの外観及び内層においてもユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。調製したロールパン1個をコーヒーミルで粉碎後、10倍量のn-ヘキサンで2回抽出し、抽出液をN0.2濾紙で濾過後、40°C下減圧濃縮し、得られた油分をn-ヘキサンで希釈し、実施例2と同様の方法でユビキノンの含量を

測定した。結果、1個34g当たりユビキノン15.3mg含有されている事が確認された。

(実施例8) チョコレートの製造

5 カカオバター(融点35°C) 22.5%、ユビキノン(鐘淵化学工業(株)製、純度99.2%) 0.2%、粉糖52.0%、カカオマス15.0%、全脂粉乳14.0%、レシチン0.3%を用い、通常実施される製造方法により、ミキシング、ロールがけ、コンチング、テンパリングをしてモールドチョコレートを得た。デポジット時の粘性及び離型性に問題なくチョコレートを得ることが出来た。

10 また、チョコレートの外観及び内層においてもユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

(実施例9) パウンドケーキの製造

実施例3で作製したユビキノンを強化したマーガリン405gと上白糖405gを入れ比重0.65までホイップし、全卵405gを5回に分けて加え混合した。その上に篩いにかけた薄力粉450gを加え混合後、パウンド型に生地を500g入れ、240°C、33分焼成し、パウンドケーキを製造した。得られたパウンドケーキの味、食感は良好であった。また、ケーキの外観及び内層においてもユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

20

(実施例10) クッキーの製造

薄力粉600g、上白糖250g、実施例3で作製したユビキノンを強化したマーガリン240g、加糖練乳30g、食塩3gを適当な柔らかさになるまで攪拌乳化した後、炭酸アンモニウム4gを水30gに溶き加え中速で徐々に乳化し、25 次いで、篩った薄力粉600gを加え攪拌し、生地をまとめ、1昼夜寝かした後、シーターで5mm厚に延ばし直径4cmの菊型で抜き取り天板に並べ、220°C 10分で焼成してクッキーを製造した。得られたクッキーの味、食感はいずれも良好であった。また、クッキーの外観及び内層においてもユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。得られたクッキー中のユビキノン含量を、

実施例7と同様にして測定した結果、クッキー1個(7.6g)当たり、ユビキノンを0.45mg含有する事を確認した。

(実施例11) ホイップクリームの製造

融点34℃のナタネ硬化油70部と融点32℃のヤシ硬化油30部からなる混合油脂に乳化剤として合成ジグリセロールステアレート0.8部、大豆レシチン0.6部、ユビキノン(鐘淵化学工業(株)製、純度99.2%)0.5部を油温70℃において添加溶解して油脂組成物を得た。別に脱脂乳54.9部にヘキサメタリン酸ナトリウム0.1部を加え55℃まで攪拌しつつ加温した。この脱脂乳中に前記の乳化剤添加油脂組成物45部を加え攪拌溶解、65℃に保持しつつ予備乳化し、この混合物をホモジナイザーに通し、1回目80kg/cm²、2回目20kg/cm²の圧力にて均質化した後、95℃、15秒間殺菌処理を行い、更にプレート式冷却機を用いて5℃まで冷却した後、5℃の恒温器中に24時間エージングしてユビキノンを富化した起泡性合成クリームを得る事が出来た。得られたクリームの風味に問題は無く、ユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。得られた起泡性合成クリームを予め準備したスポンジケーキに塗布しデコレーションケーキを作製出来た。

(実施例12) 濃縮乳の製造

大豆油(商品名:大豆ゴールデンサラダ油、吉原精油(株)製、融点は0℃以下)10部にレシチン0.1部、ユビキノン0.5部を添加し65℃で溶解して油相部とした。一方、脱脂粉乳25部、グリセリン脂肪酸エステル0.1部、ショ糖脂肪酸エステル0.1部を60℃の水64.2部に溶解し水相部とした。先の油相部と水相部を合わせホモジナイザーにて乳化させた。その後145℃、4秒間滅菌処理をしたのち、均質化圧200kg/cm²にて処理したのち冷却して容器に充填し、油のうま味、こく味を保持した風味の良いユビキノンを含有する加工用濃縮乳を得た。この濃縮乳はユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

(実施例 13) ミルクパンの製造

小麦粉 70 部にイースト 2 部、イーストフード 0.1 部、次いで水 40 部を加えてミキサーで混合し中種生地を作り（捏上温度 24 ℃）、4 時間予備発酵をさせた後、小麦粉 30 部、砂糖 5 部、市販のマーガリン（鐘淵化学工業（株）製、5 ネオマーガリン）6 部、食塩 2 部、脱脂粉乳 3 部、実施例 12 の濃縮乳 8 部、水 15 部を加え本捏生地を作製した後、フロアタイム 25 分後分割し、ベンチタイム 25 分後、成形し、ホイロ 38 ℃・50 分、焼成 180 ℃・35 分でミルクパンを製造した。得られたパンの外観及び内層においてもユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

10

(実施例 14) ホワイトソース並びにピザ及びグラタンパンの製造

小麦粉 100 g と実施例 3 で作製したユビキノンを富化したマーガリン 100 g を同時に炒めて作製したホワイトソース用ルウに、実施例 12 で製造したユビキノンを富化した加工用濃縮乳 400 g を水で 2 倍に希釈した水溶液 800 g に 15 食塩、香辛料 1.0 g を添加してルウを伸ばしながら 85 ℃になるまで攪拌しながら加熱してホワイトソースを製造した。これを缶に充填しレトルト殺菌機により 121 ℃、20 分間加熱処理した後、室温まで冷やしレトルトホワイトソースを得た。得られたホワイトソースは風味、食感ともに良好であった。

更に、上記で作製したレトルト殺菌前のホワイトソース 100 部に鶏肉を湯がいて処理した物を 10 部、酵母エキス 0.2 部、チキンコンソメ 0.6 部を添加したチキングラタンを作製し、これをピザ用トッピング、調理パン用フィリング剤として使用したところ、それぞれ、従来品に遜色ないピザ及びグラタンパンを得た。

25 (実施例 15) ホワイトナーの製造

大豆油（商品名：大豆ゴールデンサラダ油、吉原製油（株）製、融点は 0 ℃以下）360 重量部を 65～70 ℃に加温した後、大豆レシチン 7.2 重量部及び蔗糖脂肪酸エステル（HLB 値 1）4.5 重量部、ユビキノン（鐘淵化学工業（株）製、純度 99.2%）10 部をそれぞれ加えて溶解し、油相を調製した。別

途、65～70℃の温水1212.3重量部に脱脂粉乳57.6重量部、カゼイ
ンナトリウム81重量部、トレハロース（商品名：トレハオース、林原商事販売
）40重量部、蔗糖18重量部、親水性乳化剤としてのポリグリセリン脂肪酸エ
ステル（商品名：ポエム0081H（HLB値14）、理研ビタミン販売）1.
5 8重量部、蔗糖脂肪酸エステル（HLB値15）3.6重量部、第二磷酸ナトリ
ウム5.4重量部及び第二磷酸カリウム3.6重量部をそれぞれ加えて溶解し、
水相を調製した。このようにして調製した水相及び油相をそれぞれ均質機にとり、
搅拌しながら65～70℃で15分間加熱して予備乳化した後、印加する圧力を
10 2段階（第一段階180kg/cm²、第二段階50kg/cm²）に変えて均
質化した。次いで、UHT滅菌機に移し、145℃で2秒間加熱して滅菌した後、
無菌均質機に移し、圧力を2段階（第一段階100kg/cm²、第二段階50
kg/cm²）に変えつつ70℃でさらに均質化して、風味に問題のないユビキ
ノンを富化したホワイトナーを得た。このホワイトナーはユビキノンの局在化に
起因する色むらは確認されなかった。

15

(実施例16) カスタードクリームの製造

鍋に卵黄2個をほぐし、実施例12で製造したユビキノンを富化した濃縮乳1
00mlを2倍に希釈した溶液200mlの内大さじ2を加え、木べらで混ぜ、
小麦粉大さじ2杯と砂糖40gを加えよく混ぜ合わせ、残りの濃縮乳の希釈液を
20 徐々に加え全体に不均一を作らないようによく混ぜ、90℃で30分間クリーム
状になるまでに混ぜ煮上げ、粗熱をとりバニラエッセンスを加え良くかき混ぜる
事により風味の良いユビキノンを富化したカスタードクリームを得た。このカス
タードクリームはユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

25 (実施例17) シューケリームの製造

大豆油（商品名：大豆ゴールデンサラダ油、吉原製油（株）製、融点は0℃以
下）20%、大豆硬化油（融点40℃）60%、パーム油（融点28℃）20%
よりなる油脂組成物を50部、ユビキノンを1部、レシチンを0.3部、モノグ
リセリド0.3部、水16部、食塩2部、抗酸化剤としてビタミンEを5ppm

加え、60°Cで、乳化タンクで15分間攪拌乳化したのち、15°Cに急冷捏和し、ユビキノン含有マーガリンを得た。得られたマーガリン130g、実施例12で調製したユビキノンを富化した濃縮乳65mlを水で2倍に希釈したもの130mlを鍋に入れ50°Cでマーガリンを溶かし、マーガリンが完全に溶けて煮だつてきたところで、ふるいにかけた薄力粉800gを加え混合して、澱粉をα化させた。200mlの全卵を数回に分けて添加し良く混合した。最後の全卵を添加する時に炭酸アンモニウム0.5gを良く全卵に溶解して添加した。次いで、直径10cmの丸い金口をつけた絞り袋を生地に詰め、ペーパーを敷いた鉄板の上に丸い形を作り、生地全体にきりふきで水をふきかけ、200°Cに温めたオーブンの下段にいれて10分焼成し、十分ふくらんだ後、更に170°Cで焼成しシュ一生地を製造した。焼成後、網の上にのせてさまし、皮の上から1/3ぐらいのところを横に切り、その間に実施例16で調製したカスタードクリームを入れ、風味、食感に問題のないユビキノンを富化したシュークリームを作製した。このシュークリームはユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

15

(実施例18) チョコレートババロアの調製

鍋に実施例12で製造した濃縮乳の2倍希釈溶液250mlと砂糖20gを入れ火にかけ、沸騰直前に火を止め、予め用意した卵黄2個と砂糖20gを泡立てたものに、数回に分けて加え、かき混ぜ、弱火で加熱後、水でもどしたゼラチン6gをいれよくかき混ぜ、濾しながら、チョコレート50gを入れたボールに少しずつ入れかき混ぜた後、実施例11で調製したクリーム100mlを泡立て、3回に分けて加え混ぜ、プリン型に流し入れ、冷蔵庫でよく冷やす事により、風味の良いユビキノンを富化したチョコレートババロアを得た。このチョコレートババロアはユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

25

(実施例19) カレールウの製造

小麦粉20部と大豆油（商品名：大豆ゴールデンサラダ油、吉原製油（株）製、融点は0°C以下）20部を用いて焙煎処理した小麦粉39部と食用油脂（豚脂（融点35°C）と牛脂（融点47°C）の混合脂）15部、ユビキノン1部、カレー

粉20部、食塩10部、各種ブイヨン等の調味料15部を90℃で30分間加熱混合しユビキノンを富化したカレールウを調製した。何れも、風味、口当たりに問題無く、ユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

5 (実施例20) ベジヤメルソースの製造

まず、厚手の鍋に、大豆油（商品名：大豆ゴールデンサラダ油、吉原製油（株）製、融点は0℃以下）100gを入れ、加熱しながら薄力粉100gとユビキノン5gを1度に入れ、焦がさないよう注意しながら、90℃で20分間、木しやもじで良くかき混ぜた。その後、火から下ろし、粗熱を取りホワイトルウを得た。更に冷たい牛乳1カップを入れ良くかき混ぜなめらかにし、10℃の牛乳1.5カップ加え、泡立て器にて、ツヤが出るくらいまで十分にかき混ぜ、10℃の牛乳2.5カップを加え良くかき混ぜた。その後、クローブを刺したタマネギ、月桂樹の葉を加え、とろ火で煮詰め、とろとろにした。月桂樹の葉、タマネギを取り出し、シノワで瀝し、再び鍋に移し、弱火で焦げ付かない程度に火を入れ、風味、口当たりともに良好なユビキノンを富化したベジヤメルソース550gを得た。このソースはユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

(実施例21) マヨネーズの製造

食酢（酢酸を10%含む物）5部、食塩2部、砂糖0.5部、マスタード粉末0.3部、水0.2部を混合器の中に加え、15℃～20℃下で攪拌混合し水相を調製した後、米白絞油（融点は0℃以下）68部に卵黄7部、ユビキノン0.5部を加え攪拌乳化して得た乳化液（10℃～15℃）を少しづつ加えながら15℃～20℃下で攪拌し予備乳化した。次いで、コロイドミルを用いて仕上げ乳化を行い、ユビキノンを富化したマヨネーズを得た。得られたマヨネーズの旨味、こく味、口当たりは、市販のマヨネーズと同等であった。このマヨネーズはユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

(実施例22) フレンチドレッシングの製造

水33.1部に食酢（酢酸濃度10%）15部、砂糖8部、澱粉3部、胡椒0.

5部、キサンタンガム0.4部を溶解後殺菌のため80°C、30分加温後、20°Cまで冷却後、予め10~15°Cに保温した米白絞油（融点は0°C以下）40部、ユビキノン1部を加え、15~20°Cで攪拌し予備乳化を行い、その後コロイドミルを用いて仕上げ乳化を行い、フレンチドレッシングを得た。得られたフレンチドレッシングの旨味、こく味、口当たりは良好であり、ユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

（実施例23） ポテトサラダの製造

10 皮をむいた馬鈴薯5部、人参1部を角切りにし、サランラップに包んだ後、電子レンジの根菜調理条件で加温し柔らかくした後冷却し、別途用意したさらしタマネギ2部を加え、最後に実施例21で製造したユビキノンを富化したマヨネーズを2部加え混ぜ合わせる事により風味と口触りの良好なユビキノンを富化したポテトサラダを得た。

15 （実施例24） アイスクリームの調製

容器に卵黄10個分を溶きほぐし、砂糖250g、コーンスターク10gをいれ良くかき混ぜ、実施例12で製造したユビキノンを富化した濃縮乳の2倍希釈液1Lを75°Cに加温し徐々に加え混ぜ合わせ、すいのうで濾し、90°Cで45分間温め、焦げ付かさないようにゆっくりとどろりとなるまで混ぜた後、氷で冷却し、冷えた後、バニラエッセンス少々を加え、-20°Cで攪拌冷凍し、固まつて来たら、実施例11で調製したユビキノンを富化したホップクリーム270gを泡立てた後加え、更に攪拌冷却し、容器に入れ冷凍し、風味と口当たりの良いバニラアイスクリームを得た。このバニラアイスクリームはユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

25

（実施例25） プリンの調製

実施例12で製造したユビキノンを富化した濃縮乳の2倍希釈液1000mlを40°C程度まで温めて、砂糖250gと全卵250gを合わせたものに混合した。このプリン液を裏ごしした後プリン型に流し入れ150°Cのオーブンで30

～40分湯煎焼きすることにより風味の良いカスタードプリンを得た。このカスタードプリンはユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

(実施例26) ピックル液及びトンカツの製造

5 大豆油（商品名：大豆ゴールデンサラダ油、吉原製油（株）製、融点は0°C以下）5部、カゼインナトリウム0.1部、ピロリン酸4ナトリウム0.1部、食塩2部、ユビキノン0.2部を混合攪拌し、さらに水95.6部を加え、圧力ホモジナイザーを用い100kg/cm²で乳化しユビキノンを富化したピックル液をえた。

10 トンカツ用ロース肉に対しピックル液を肉重量の20%相当インジェクションした後マッサージをかけ、一口サイズにカットし、バッター液に潜らせた後、パン粉を付けてフライし、ジューシーで風味のよいユビキノンを富化したトンカツを得た。

15 (実施例27) 塗布用油脂組成物及びバターロールの製造

水68部に溶き卵2部を徐々に添加しながらホモミキサーで分散させ、70°Cに加温した。次いで予め大豆油（商品名：大豆ゴールデンサラダ油、吉原製油（株）製、融点は0°C以下）30部にユビキノン1部を溶解させた油脂を徐々に添加し、更に10分間攪拌した後、142°C、2秒間殺菌し、圧力ホモジナイザーを用い100kg/cm²で乳化しユビキノンを富化した塗布用油脂組成物を得た。

得られた塗布用油脂組成物を、発酵させたバターロール生地1個分当たり0.5g塗布し、200°C、9分間焼成し、艶と風味のよいユビキノンを富化したバターロールを得た。

25

(実施例28) コロッケの製造

常法により調製したコロッケ中種にバッターミックス粉（商品名：バッターミックスU-869、理研ビタミン（株）製）、菜種油と水を1:2:4で混合したバッターを付け、パン粉を付け170°Cでフライ後、コロッケを得た。得られた

たコロッケ 1 個 (約 40 g) の表裏に実施例 27 で製造した塗布用組成物を 1 g 噴霧した。この様にして得られたユビキノンを富化したコロッケは、冷凍保存後電子レンジで調理しても、食感が良好で、風味も良く、ユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

5

(実施例 29) スナック菓子の製造

コーンフラワー 5.5 部、馬鈴薯澱粉 1.3 部、グラニュー糖 3 部、食塩 0.5 部及び水 2.2 部を二軸エクストルーダーに供給してバレル温度 140 °C で 7 秒間処理し、螺旋状に押し出し、これを 3.0 mm 間隔で切断して、厚みが 0.8 mm のスナック生地を得た。得られたスナック生地を 40 °C、16 時間予備乾燥後、コンベヤドライヤーにて、260 °C、26 秒間膨化処理した。得られた膨化処理後の生地 100 g に対して、実施例 27 で得た塗布用組成物 3 g を噴霧して、風味、色艶の良いユビキノンを富化したスナック菓子を得た。このスナック菓子はユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

15

(実施例 30) うどんの製造

まず、大豆油 (商品名: 大豆ゴールデンサラダ油、吉原製油 (株) 製、融点は 0 °C 以下) 2.0 部、グリセリンモノ飽和脂肪酸エステル (商品名: エマルジー M S、理研ビタミン (株) 製) 2.5 部、グリセリンモノ不飽和脂肪酸エステル (商品名: ポエム O L-200、理研ビタミン (株) 製) 0.8 部、ポリグリセリン脂肪酸エステル (商品名: ポエム O L-100A、理研ビタミン (株) 製) 0.05 部、蔗糖脂肪酸エステル (HLB-1) (商品名: DKF-10、第一工業製薬 (株) 製) 1.5 部、レシチン表 0.4 部、ユビキノン 1 部よりなる油相部を混合、加熱、溶解し、油相とした。一方、水 3.0 部、還元澱粉糖化物 (商品名: エスイー 57 (固形分 75 %)、日研化学 (株) 製) 1.3 部、ソルビトール (商品名: ソルビトール F (固形分 70 %)、日研化学 (株) 製) 2.5 部、配合の水相部組成物を混合、加熱し、水相とした。次に、上記油相と水相とを混合し、ホモミキサーで乳化し、更に攪拌、混合しながらユビキノンを富化した乳化油脂組成物を得た。次いで、上記で得た各油脂乳化物それぞれ 3 部に対し、小麦粉 1

00部、水32部を加え常法により、混捏、成型、ロール圧延を行って得た、厚さ2.5mmの麺帯をNo.10の切刃で切り出し、生うどんを得た。得られた生うどんを沸騰水中で7分間ゆで、ゆでたうどんの状態および食感を判定した。その結果、コシがあるうどんであった。また、生麺を10日間冷蔵保存後、同様に評価したところ、風味、食感とも問題なく、ユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

(実施例31) ミルクティーの製造

紅茶の葉の熱水抽出物50g、グラニュー糖60g、蔗糖脂肪酸エステル0.5g、重炭酸ナトリウム1gを加え溶解した後、実施例12で製造したユビキノンを富化した加工用濃縮乳50gを添加し、水を加えて1000mlの風味の良い乳化物を得た。80℃に加熱後、缶容器(190ml)に充填し124℃、20分のレトルト殺菌を行い、油脂風味特有のこく味のあるユビキノンを富化したミルクティー缶飲料を得た。このミルクティーはユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

(実施例32) カフェオレの製造

実施例12で製造したユビキノンを富化した加工用濃縮乳50gを、コーヒー抽出物50g、グラニュー糖60g、蔗糖脂肪酸エステル0.5g、重炭酸ナトリウム1gに配合攪拌乳化し、風味とこく味の良いユビキノンを富化したカフェオレを得た。このカフェオレはユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

(実施例33) 酸性飲料の製造

米白絞油(融点は0℃以下)100g取り、それぞれに、シュークロース・ジアセテート・ヘキサイソブチレート130g、ユビキノン2g及び天然ビタミンE1gを混合溶解して均一な油性材料混合物を得た。この混合物をグリセリン615g、デカグリセリンモノオレート(HLB12)60g及び水135gを混合溶解した溶液に加えて予備攪拌して分散させた後、T.K.ホモミキサー(特

殊機化工業製) を用い 5000 r.p.m にて 10 分間乳化し、均一な乳化組成物を得た。別途、グラニュー糖 200 g、クエン酸 5 g、ビタミン C 0.5 g を適量の水に溶解し、クエン酸ナトリウムを用いて pH 3.0 に調整した後、2 L として酸性飲料用シロップを調製した。このシロップ各 180 ml に上記で調製した 5 乳化物をそれぞれ 20 ml を添加混合した後、ビンに充填後打栓し、85 °C にて 15 分間殺菌後冷却し、ユビキノンを富化した酸性飲料を得た。この酸性飲料は ユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

(実施例 34) コーヒー飲料の製造

10 蔗糖脂肪酸エステル (HLB 16) 6 g、ソルビタン脂肪酸エステル (HLB 7) 8 g、リン酸塩 1 g、カラギーナン 0.5 g、カゼインナトリウム 65 g、アスコルビン酸ナトリウム 38 g、水 550 g を混合し 60 °C に加温し溶解した。別途、米白絞油 (融点は 0 °C 以下) 200 g、大豆硬化油 (融点 40 °C) 100 g、蔗糖脂肪酸エステル (HLB 1) 2 g、ユビキノン 5 g、天然ビタミン E 0.5 g、 β -カロテン 0.5 g、レシチン 0.3 g、トコトリエノール 0.3 g、ゴマリグナン 0.1 g を混合し 60 °C にて溶解した。60 °C に保温された水相部 15 に、同じく 60 °C に保温された油相部を攪拌しながら流加し予備乳化した。次いで 180 kg/cm² の圧力にてホモジナイズして乳化液を得た後、120 °C、20 秒の UHT 殺菌を行い容器に充填することで、無菌乳化液を得た。次いで、 20 焙煎コーヒー豆の熱水抽出物 50 g、グラニュー糖 60 g、蔗糖脂肪酸エステル 0.5 g、重炭酸ナトリウム 1 g を加え溶解した後、上記で得た無菌乳化液 20 g を添加し、水を加えて 1000 ml の乳化物含有コーヒー抽出液を得た。80 °C に加熱後、缶容器 (190 ml) に充填し 124 °C、20 分のレトルト殺菌を行い、風味の良いユビキノンを富化したコーヒー缶飲料を得た。このコーヒー飲料はユビキノンの局在化に起因する色むらは確認されなかった。

(実施例 35) ロールパン及びクッキーによる血中ユビキノン濃度の上昇

Crj : CD (SD) ラット雄性 (体重 260 g ~ 300 g) 16 匹を 4 匹毎 4 群群に分けた。第 1 群 (ユビキノンロールパン群) は、飼料として実施例 7 で

5 製造したユビキノンを富化した食卓ロールパンを1日1個(30g)与え、第2群(対照ロールパン群)は、飼料としてユビキノンを添加しないで実施例7と同様にして製造した食卓ロールパンを1日1個(30g)を与え、第3群(ユビキノンクッキー群)は、実施例10で製造したユビキノンを富化したクッキーを1日4個(28g)与え、第4群(対照クッキー群)は、飼料として、ユビキノンを添加しないで実施例10と同様にして製造したクッキーを1日4個(28g)与え、水は自由摂取として1週間飼育した。

10 1週間目の朝エーテル麻酔下、腹部大動脈より採血した。採取した血漿1.0m1に水2.0m1、エタノール4.0m1、n-ヘキサン10.0m1を順次加え、約5分間激しく振盪し、遠心分離して二層に分離した。有機溶媒層を分取し、残りの水層にn-ヘキサン10.0m1を加え同様の抽出操作を2回繰り返し、得られた有機溶媒層を合一し、減圧下溶媒を溜去し乾固物を得た。得られた乾固物を250μlのエタノール:1N塩酸(99:1、v/v)に溶解後、その10μlを高速液体クロマトグラフィーを用いて分析し、ユビキノン量を測定した。高速液体クロマトグラフィーの条件は、カラム:YMC-PACKR&D ODS、250×4.6mm(YMC社製)、移動相:0.5M NaClO₄/C₂H₅OH:CH₃OH:CH₃CN:70%HClO₄(400:300:300:1、v:v)、検出波長:275nm、流速:1m1/minで実施した。

20 結果、対照ロールパン群の血中ユビキノン濃度は4匹平均0.01μg/mlであったのに対し、ユビキノンロールパン群では、0.46μg/mlと有意な血中ユビキノン濃度の上昇が認められた。同様に対照クッキー群では0.01μg/mlであったのに対し、ユビキノンクッキー群では、0.48μg/mlであった。何れもユビキノン富化食品の摂取により血中ユビキノン含量が有意に高くなっており、ユビキノン富化食品を摂取する事により、容易に不足しがちなユビキノンを補給出来る事が確認された。

産業上の利用の可能性

本発明により、食品中にユビキノンを均一に溶解・分散できるようになり、且つ、食品保存中のユビキノンの析出や局在化も防止することができる。このよう

にユビキノンを均一に溶解・分散させて富化した食品は、通常の食品と同様に摂取することにより、不足しがちなユビキノンを補給することが出来る食品である。ユビキノン不足により引き起こされる疲労や種々の不健康状態の予防・改善用食品として有用である。

請求の範囲

1. ユビキノン及び油脂を含有する組成物を添加して得られることを特徴とするユビキノン補給用食品。
5
2. ユビキノンを、食品総重量に対して 0.001～50 重量% 含有する請求項 1 記載のユビキノン補給用食品。
3. ユビキノンを、油脂総重量に対して 0.01～50 重量% 含有する請求項
10 1 又は 2 記載のユビキノン補給用食品。
4. 油脂は、融点が 20 °C 以上のものである請求項 1～3 いずれか 1 項に記載のユビキノン補給用食品。
15
5. ユビキノン及び油脂を含有する組成物は、融点が 20 °C 以上の油脂にユビキノンを加熱溶解し、得られた混合物を、固化若しくは可塑化するか、又は、水中油型乳化物若しくは油中水型乳化物に調製したものである請求項 4 記載のユビキノン補給用食品。
6. 油脂は、融点が 20 °C 未満のものである請求項 1～3 いずれか 1 項に記載のユビキノン補給用食品。
20
7. ユビキノン及び油脂を含有する組成物は、融点が 20 °C 未満の油脂にユビキノンを加熱溶解し、得られた混合物を、水中油型乳化物に調製したものである
25 請求項 6 記載のユビキノン補給用食品。
8. 食品は、食品用油脂類、乳、乳製品類、ソース類、パン類、パイ類、ケーキ類、菓子類、ルウ類、調味液類、氷菓類、麺類、加工食品、米飯類、ジャム類、

缶詰類及び飲料類からなる群より選択される 1 種以上である請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載のユビキノン補給用食品。

9. さらに、抗酸化性物質及び／又は可食性色素を含有する請求項 1 ~ 8 のいずれか 1 項に記載のユビキノン補給用食品。

10. 抗酸化性物質及び／又は可食性色素は、アスコルビルパルミテート、アスコルビルステアレート、カテキン、レシチン、トコフェロール、トコトリエノール、リグナン及びカロチノイドからなる群より選択される 1 種以上である請求項 9 記載のユビキノン補給用食品。

11. ユビキノンを含有する食用油脂組成物。

12. ユビキノンを、油脂組成物総重量に対して 0.01 ~ 50 重量% 含有する請求項 11 記載の食用油脂組成物。

13. さらに、抗酸化性物質及び／又は可食性色素を含有する請求項 11 又は 12 記載の食用油脂組成物。

14. 抗酸化性物質及び／又は可食性色素は、アスコルビルパルミテート、アスコルビルステアレート、カテキン、レシチン、トコフェロール、トコトリエノール、リグナン及びカロチノイドからなる群より選択される 1 種以上である請求項 13 記載の食用油脂組成物。

15. ユビキノンを油脂に加熱溶解し、得られた混合物を食品原料に添加することを特徴とする、ユビキノン補給用食品の製造方法。

16. 油脂は融点が 20 °C 以上のものであり、食品原料に添加する混合物は、

ユビキノンを前記油脂に加熱溶解した後、固化若しくは可塑化されたものであるか、又は、水中油型乳化物若しくは油中水型乳化物に調製されたものである請求項 1 5 記載の製造方法。

5 17. 油脂は融点が 20°C 未満のものであり、食品原料に添加する混合物は、
ユビキノンを前記油脂に加熱溶解した後、水中油型乳化物に調製されたものである請求項 1 5 記載の製造方法。

10 18. 請求項 1 5 ~ 1 7 のいずれか 1 項に記載の製造方法によって得られるユ
ビキノン補給用食品。

19. ユビキノンを油脂に加熱溶解し、得られた混合物を食品原料に添加して
食品を製造することを特徴とする、食品中でのユビキノンの析出及び／又は局在
化防止方法。

15 20. 油脂は融点が 20°C 以上のものであり、食品原料に添加する混合物は、
ユビキノンを前記油脂に加熱溶解した後、固化若しくは可塑化されたものである
か、又は、水中油型乳化物若しくは油中水型乳化物に調製されたものである請求
項 1 9 記載の方法。

20 21. 油脂は融点が 20°C 未満のものであり、食品原料に添加する混合物は、
ユビキノンを前記油脂に加熱溶解した後、水中油型乳化物に調製されたものである
請求項 1 9 記載の方法。

25 22. 請求項 1 ~ 1 4 又は 1 8 のいずれか 1 項に記載の食品を摂取することを
特徴とする、ユビキノンの補給方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/00396

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.C1⁷ A23D9/00, A23L1/30, C11B5/00, C09K15/04

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.C1⁷ A23D9/00, A23L1/30, C11B5/00, C09K15/04

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CA/WPIDS (STN), SHOKUHINKANREN BUNKEN JOHO (SHOKUNETTO), (in Japanese)
FOODLINE/FOODS ADLIBRA/FOOD SCIENCE AND TECHNOLOGY ABSTRACTS (DIALOG)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	EP 424679 A2 (SOCIETE DES PRODUITS NESTLE S.A.), 27 September, 1990 (27.09.90), Full text & JP 3-167293 A & US 5258179 A & DE 69024321 A & CA 2027677 A	<u>11-14</u> 1-22
X Y	JP 57-142911 A (Freund Industrial Co., Ltd.), 03 September, 1982 (03.09.82), Full text (Family: none)	<u>11-14</u> 1-22
X Y	C. Weber et al., "Antioxidative Effect of Dietary Coenzyme Q ₁₀ in Human Blood Plasma", Vitamin and Nutrition Research, 1994, Vol.64(4), pages 311 to 315, full text	<u>11-14</u> 1-22

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

"A"	Special categories of cited documents: document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"T"	later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"E"	earlier document but published on or after the international filing date	"X"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"L"	document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"Y"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"O"	document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&"	document member of the same patent family
"P"	document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		

Date of the actual completion of the international search 17 April, 2003 (17.04.03)	Date of mailing of the international search report 30 April, 2003 (30.04.03)
--	---

Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/00396

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 803201 A2 (CPC INTERNATIONAL INC.), 29 October, 1997 (29.10.97), Full text & JP 10-45614 A	1-22
Y	WO 96/38047 A1 (UNILEVER N.V.), 05 December, 1996 (05.12.96), Claims; examples & US 6441050 A & AU 200183426 A	1-22
E, X	JP 2003-88330 A (Kabushiki Kaisha Wakan Shoyaku Kenkyusho), 25 March, 2003 (25.03.03), Full text (Family: none)	11-14
P, A	WO 02/17879 A1 (CHOPRA, Raj, K.), 07 March, 2002 (07.03.02), Claims; examples & EP 828434 A1 & JP 11-506324 A & CA 2362968 A1 & DE 69606638 A	1-22

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl' A23D9/00, A23L1/30, C11B5/00, C09K15/04

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl' A23D9/00, A23L1/30, C11B5/00, C09K15/04

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CA/WPIDS(STN), 食品関連文献情報 (食ネット),
FOODLINE/FOODS ADLIBRA/FOOD SCIENCE AND TECHNOLOGY ABSTRACTS (DIALOG)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	EP 424679 A2 (SOCIETE DES PRODUITS NESTLE S. A.) 1990.09.27, 文献全体参照, & JP 3-167293 A & US 5258179 A & DE 69024321 A & CA 2027677 A	11-14 1-22
X Y	JP 57-142911 A (フロイント産業株式会社) 1982.09.03, 文献全体参照, (ファミリーなし)	11-14 1-22
X Y	C. Weber et al. "Antioxidative Effect of Dietary Coenzyme Q ₁₀ in Human Blood Plasma" Vitamin and Nutrition Research, 1994, Vol. 64(4), p. 311-315, 文献全体参照	11-14 1-22

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

17.04.03

国際調査報告の発送日

30.04.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

坂崎 恵美子



4 N 9451

電話番号 03-3581-1101 内線 3488

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	EP 803201 A2 (CPC INTERNATIONAL INC.) 1997.10.29, 文献全体参照, & JP 10-45614 A	1-22
Y	WO 96/38047 A1 (UNILEVER N.V.) 1996.12.05, 特許請求の範囲及び実施例等参照, & US 6441050 A & AU 200183426 A	1-22
E, X	JP 2003-88330 A (株式会社和漢生薬研究所) 2003.03.25, 文献全体参照, (ファミリーなし)	11-14
P, A	WO 02/17879 A1 (CHOPRA, Raj, K.) 2002.03.07, 特許請求の範囲及び実施例等参照, & EP 828434 A1 & JP 11-506324 A & CA 2362968 A1 & DE 69606638 A	1-22